

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
26. Februar 2004 (26.02.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2004/017063 A3

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: G01N 29/02, 27/00

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Wittelsbacherplatz 2, 80333 München (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE2003/002226

(72) Erfinder; und

(22) Internationales Anmeldedatum:
3. Juli 2003 (03.07.2003)

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): GABL, Reinhard [AT/DE]; Adlzreiterstrasse 25, 80337 München (DE). WERSING, Wolfram [DE/DE]; Wagnerfeldweg 10, 83346 Bergen (DE). FEUCHT, Hans-Dieter [DE/DE]; Eschenweg 7, 71272 Renningen (DE). ZEININGER, Heinrich [DE/DE]; Tannenstrasse 6, 90587 Obermichelbach (DE).

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

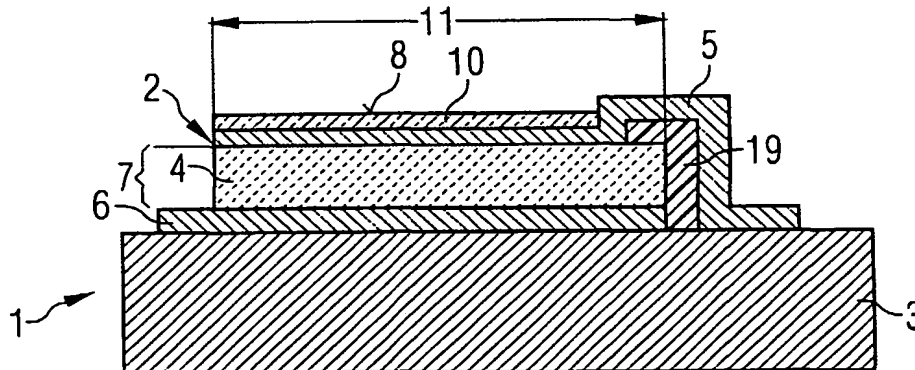
(30) Angaben zur Priorität:
102 32 940.0 19. Juli 2002 (19.07.2002) DE
103 08 975.6 28. Februar 2003 (28.02.2003) DE

(74) Gemeinsamer Vertreter: SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, 80506 München (DE).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: DEVICE AND METHOD FOR DETECTING A SUBSTANCE WITH THE AID OF A HIGH FREQUENCY PIEZO-ACOUSTIC THIN FILM RESONATOR

(54) Bezeichnung: VORRICHTUNG UND VERFAHREN ZUR DETEKTION EINER SUBSTANZ MITHILFE EINES HOCH-FREQUENTEN PIEZOAKUSTISCHEN DÜNNFILMRESONATORS



(57) Abstract: The invention relates to a device (1) for detecting at least one substance of a fluid (9). The device comprises at least one piezo-acoustic resonator (2) with at least one piezo layer (4), an electrode (5) arranged on the piezo-electric layer, at least one other electrode (6) arranged on the piezo-electric layer and a surface section (8) used for sorption of the substance of the fluid. The piezo-electric layer, the electrodes and the surface section are disposed in such a way that electric control of the electrodes leads to an oscillation (51,52) of the resonator at a resonance frequency which depends upon the amount of the substance which is sorbed on the surface section. The device is characterized in that the thickness (7) of the piezo-electric layer is in the region of 0.5 μm to 20 μm and the resonance frequency of the oscillation ranges from 500 MHz to 2 GHz. The device is a mass sensor with a piezo-acoustic high-frequency thin film resonator. The device is characterized by high mass sensitivity in the region of a few Hz/εpg⁻¹cm² and small lateral expansion. The device is used as a bio sensor or gas sensor.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft eine Vorrichtung (1) zur Detektion mindestens einer Substanz eines Fluids (9). Die Vorrichtung weist mindestens einen piezoakustischen Resonator (2) mit mindestens einer piezoelektrischen Schicht (4), einer an der piezoelektrischen Schicht angeordneten Elektrode (5), mindestens einer an der piezoelektrischen Schicht angeordneten

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]



(81) **Bestimmungsstaaten (national):** AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) **Bestimmungsstaaten (regional):** ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL,

PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

(88) **Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts:**

13. Mai 2004

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

weiteren Elektrode (6) und einem Oberflächenabschnitt (8) zur Sorption der Substanz des Fluids auf, wobei die piezoelektrische Schicht, die Elektroden und der Oberflächenabschnitt derart aneinander angeordnet sind, dass eine elektrische Ansteuerung der Elektroden zu einer Schwingung (51, 52) des Resonators mit einer Resonanzfrequenz führt und die Resonanzfrequenz abhängig ist von einer am Oberflächenabschnitt sorbierten Menge der Substanz. Die Vorrichtung ist dadurch gekennzeichnet, dass eine Schichtdicke (7) der piezoelektrischen Schicht aus dem Bereich von einschliesslich 0,5 µm bis einschliesslich 20 µm und die Resonanzfrequenz der Schwingung aus dem Bereich von einschliesslich 500 MHz bis einschliesslich 2 GHz ausgewählt ist. Die Vorrichtung ist ein Massensensor mit einem piezoakustischen Hochfrequenz-Dünnschichtresonator. Die Vorrichtung zeichnet sich durch eine hohe Massensensitivität im Bereich von wenigen Hz×pg⁻¹×cm² aus und eine kleine laterale Ausdehnung. Die Vorrichtung wird als Bio- oder als Gassensor eingesetzt.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

P E 03/02226

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 G01N29/02 G01N27/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 G01N H03B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, BIOSIS, COMPENDEX, EMBASE, INSPEC, PAJ, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 5 932 953 A (DREES DENNIS M ET AL) 3 August 1999 (1999-08-03)	1-6, 10, 13, 15, 17-22
Y	abstract; figures 1A, 1B, 5A, 5B	8, 9, 22, 23
A	column 1, line 6 - line 60 column 3, line 33 - line 43 column 6, line 23 - line 65 column 7, line 45 - column 8, line 48	7, 11-14, 16
X	R.M. WHITE: "Surface acoustic wave sensors" ULTRASONICS SYMPOSIUM 1985, 1985, pages 490-494, XP001155517	1, 4, 5, 18-21
A	the whole document	2, 3, 6, 7

-/-

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

6 February 2004

Date of mailing of the international search report

09.03.04

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Uttenthaler, E

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

P E 03/02226

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 1 143 241 A (INTERUNIVERSITAIRE MICROELEKTR) 10 October 2001 (2001-10-10) abstract; figures 1,3 column 1, line 9 - column 8, line 48	1-7,13, 14,18-22
Y	US 5 075 641 A (WEBER ROBERT J ET AL) 24 December 1991 (1991-12-24) abstract; figures 1,2 column 3, line 52 - column 5, line 50	8,9
A	FERRARI V ET AL: "Multisensor array of mass microbalances for chemical detection based on resonant piezo-layers of screen-printed PZT" SENSORS AND ACTUATORS B, ELSEVIER SEQUOIA S.A., LAUSANNE, CH, vol. 68, no. 1-3, 25 August 2000 (2000-08-25), pages 81-87, XP004216596 ISSN: 0925-4005 cited in the application the whole document	1,18-21
Y	I. WILLNER, E. KATZ: "Redoxproteinschichten auf leitenden Trägern - Systeme für bioelektronische Anwendungen" ANGEW. CHEM., vol. 112, 2000, pages 1230-1269, XP002269190 cited in the application the whole document	22,23
A		7,13,14, 19-21
A	LIANG HONGWEI ET AL: "Material parameter characterization of multilayer LTCC and implementation of high Q resonators" IEEE MTT S INT MICROWAVE SYMP DIG; IEEE MTT-S INTERNATIONAL MICROWAVE SYMPOSIUM DIGEST 1999 IEEE, PISCATAWAY, NJ, USA, vol. 4, 1999, pages 1901-1904, XP0010343609 the whole document	11,12

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/DE 03/02226

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

See supplemental sheet

As a result of the prior review under R. 40.2(e) PCT,
part additional fees are to be refunded.

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☒ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

The International Searching Authority has determined that this international application contains multiple (groups of) inventions, namely

1. Claims 1 (in part), 2-10, 13-23

high-frequency piezo acoustic thin-film resonator designed to make possible a high mass sensitivity to the chemical substance to be detected.

2. Claims 1 (in part), 11-12

high-frequency piezo acoustic thin-film resonator with a device for electrical contacting of the resonator and external evaluation equipment consisting of an FR4 and/or LTCC high-frequency substrate.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/JP98/03/02226

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5932953	A	03-08-1999	AU 8176898 A	19-01-1999
			BR 9810479 A	12-09-2000
			EP 1018173 A1	12-07-2000
			WO 9900855 A1	07-01-1999
EP 1143241	A	10-10-2001	EP 1143241 A1	10-10-2001
			US 2001054305 A1	27-12-2001
US 5075641	A	24-12-1991	CA 2097717 A1	05-06-1992
			DE 69126623 D1	24-07-1997
			DE 69126623 T2	18-12-1997
			EP 0560925 A1	22-09-1993
			JP 6503693 T	21-04-1994
			WO 9210875 A1	25-06-1992

INTERNATIONAL RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PC 03/02226

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 G01N29/02 G01N27/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 G01N H03B

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, BIOSIS, COMPENDEX, EMBASE, INSPEC, PAJ, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 5 932 953 A (DREES DENNIS M ET AL) 3. August 1999 (1999-08-03)	1-6, 10, 13, 15, 17-22
Y	Zusammenfassung; Abbildungen 1A, 1B, 5A, 5B	8, 9, 22, 23
A	Spalte 1, Zeile 6 - Zeile 60 Spalte 3, Zeile 33 - Zeile 43 Spalte 6, Zeile 23 - Zeile 65 Spalte 7, Zeile 45 - Spalte 8, Zeile 48	7, 11-14, 16
X	R.M. WHITE: "Surface acoustic wave sensors" ULTRASONICS SYMPOSIUM 1985, 1985, Seiten 490-494, XP001155517	1, 4, 5, 18-21
A	das ganze Dokument	2, 3, 6, 7

-/-

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

6. Februar 2004

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

03.03.04

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Uttenthaler, E

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 1 143 241 A (INTERUNIVERSITAIRE MICROELEKTR) 10. Oktober 2001 (2001-10-10) Zusammenfassung; Abbildungen 1,3 Spalte 1, Zeile 9 - Spalte 8, Zeile 48	1-7,13, 14,18-22
Y	US 5 075 641 A (WEBER ROBERT J ET AL) 24. Dezember 1991 (1991-12-24) Zusammenfassung; Abbildungen 1,2 Spalte 3, Zeile 52 - Spalte 5, Zeile 50	8,9
A	FERRARI V ET AL: "Multisensor array of mass microbalances for chemical detection based on resonant piezo-layers of screen-printed PZT" SENSORS AND ACTUATORS B, ELSEVIER SEQUOIA S.A., LAUSANNE, CH, Bd. 68, Nr. 1-3, 25. August 2000 (2000-08-25), Seiten 81-87, XP004216596 ISSN: 0925-4005 in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument	1,18-21
Y	I. WILLNER, E. KATZ: "Redoxproteinschichten auf leitenden Trägern - Systeme für bioelektronische Anwendungen" ANGEW. CHEM., Bd. 112, 2000, Seiten 1230-1269, XP002269190 in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument	22,23
A		7,13,14, 19-21
A	LIANG HONGWEI ET AL: "Material parameter characterization of multilayer LTCC and implementation of high Q resonators" IEEE MTT S INT MICROWAVE SYMP DIG; IEEE MTT-S INTERNATIONAL MICROWAVE SYMPOSIUM DIGEST 1999 IEEE, PISCATAWAY, NJ, USA, Bd. 4, 1999, Seiten 1901-1904, XP0010343609 das ganze Dokument	11,12

Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1. ☐ Ansprüche Nr.
weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich
2. ☐ Ansprüche Nr.
weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
3. ☐ Ansprüche Nr.
weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

siehe Zusatzblatt

As a result of the prior review under R. 40.2(e) PCT,
part additional fees are to be refunded.

1. ☒ Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
2. ☐ Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchegebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
3. ☐ Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.
4. ☐ Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

- ☒ Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.
- ☐ Die Zahlung zusätzlicher Recherchegebühren erfolgte ohne Widerspruch.

WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 210

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, dass diese internationale Anmeldung mehrere (Gruppen von) Erfindungen enthält, nämlich:

1. Ansprüche: 1 (teilweise), 2-10, 13-23

Hochfrequenter piezoakustischer Dünnfilmresonator derart ausgestaltet, dass eine hohe Massensensitivität gegenüber der zur detektierenden chemischen Substanz ermöglicht wird.

2. Ansprüche: 1 (teilweise), 11-12

Hochfrequenter piezoakustischer Dünnfilmresonator mit einer Einrichtung zur elektrischen Kontaktierung des Resonators und externer Auswerteeinrichtung bestehend aus einem FR4- und/oder LTCC-Hochfrequenzsubstrat.

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PO 03/02226

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
US 5932953	A	03-08-1999	AU	8176898 A	19-01-1999
			BR	9810479 A	12-09-2000
			EP	1018173 A1	12-07-2000
			WO	9900855 A1	07-01-1999
EP 1143241	A	10-10-2001	EP	1143241 A1	10-10-2001
			US	2001054305 A1	27-12-2001
US 5075641	A	24-12-1991	CA	2097717 A1	05-06-1992
			DE	69126623 D1	24-07-1997
			DE	69126623 T2	18-12-1997
			EP	0560925 A1	22-09-1993
			JP	6503693 T	21-04-1994
			WO	9210875 A1	25-06-1992